

Pembuatan Bahan Piezoelektrik Ramah Lingkungan $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ dengan Metode Molten Salt (Evi Yulianti)

Akreditasi LIPI Nomor : 395/D/2012

Tanggal 24 April 2012

PEMBUATAN BAHAN PIEZOELEKTRIK RAMAH LINGKUNGAN $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ DENGAN METODE *MOLTEN SALT*

Evi Yulianti¹, Dona Triwahyuni², Syahfandi Ahda¹ dan Deswita¹

¹Pusat Teknologi Bahan Industri Nulir (PTBIN) - BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan

²Jurusan Fisika, FMIPA - UNAND

Kampus Limau Manis, Indarung, Padang

e-mail: yulianti@batan.go.id

Diterima: 30 April 2012

Diperbaiki: 22 Agustus 2012

Disetujui: 10 September 2012

ABSTRAK

PEMBUATAN BAHAN PIEZOELEKTRIK RAMAH LINGKUNGAN $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ DENGAN METODE *MOLTEN SALT*. Bahan Piezoelektrik $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) yang ramah lingkungan telah dibuat dengan metode *molten salt*. Proses pembuatan BNT terdiri dari dua tahapan, dimana pada tahap pertama dilakukan sintesis $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ (BTO) sedangkan pada tahap kedua berlangsung proses pembentukan BNT. Proses sintesis BTO terjadi dalam lelehan garam NaCl-KCl dengan terlebih dahulu mencampurkan dua bahan dasar Bi_2O_3 dan TiO_2 . Selanjutnya BTO yang telah terbentuk ditambahkan dengan Na_2CO_3 berlebih dan dipanaskan sampai terbentuk BNT. BNT yang telah disintesis selanjutnya dikarakterisasi dengan menggunakan *X-Ray Diffractometer (XRD)* untuk mengidentifikasi fasa, struktur kristal dan ukuran butir kristal dan bentuk morfologi dianalisis dengan *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive Spectroscopy (SEM-EDS)*. Dengan melakukan variasi proses diantaranya variasi suhu dan variasi komposisi berat NaCl-KCl, diperoleh suhu optimal sintesis BTO pada 950 °C dengan perbandingan berat komposisi NaCl-KCl sama dengan berat campuran Bi_2O_3 - TiO_2 . Sedangkan suhu optimal untuk sintesis BNT adalah pada 600 °C. BNT yang diperoleh mempunyai struktur kristal *rhombohedral* dengan $a = b = c = 3,884 \text{ \AA}$ dan $\alpha = \beta = \gamma = 90,12243^\circ$. Ukuran kristal BTO yang terbentuk adalah 16,769 nm sedangkan ukuran kristal BNT yang terbentuk adalah 17,139 nm.

Kata kunci: Piezoelektrik, $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$, *Molten salt*

ABSTRACT

SYNTHESIS OF $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) ECOFRIENDLY PIEZOELECTRIC MATERIAL BY MOLTEN SALT METHOD. $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) ecofriendly piezoelectric material has been prepared by molten salt method. There are two steps in synthesis process of BNT, the first step is synthesis of $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ (BTO) and the next step is formation process of BNT. Crystal BTO is produced by mixing starting materials Bi_2O_3 and TiO_2 and reacting in molten salt NaCl-KCl. Then at step two crystal BTO is mixed with excessive Na_2CO_3 and sintered until BNT is generated. BNT then characterized by X-Ray Diffractometer (XRD) for phase identification and crystal structure and Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive Spectroscopy (SEM-EDS) to identify morphology and chemical composition. By varying process parameter such as temperature and NaCl-KCl composition weight ratio, optimal temperature of synthesis BTO at 950 °C is obtained with the weight ratio of NaCl-KCl is equal with the weight of mixture of Bi_2O_3 - TiO_2 and the optimal temperature synthesis of BNT at 600 °C. Crystal structure of ceramic BNT is rhombohedral with the lattice parameters $a = b = c = 3.884 \text{ \AA}$ and $\alpha = \beta = \gamma = 90.12243^\circ$. The crystal size of BTO is 16.769 nm and the crystal size of BNT is 17.139 nm

Keywords: Piezoelectric, $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$, Molten salt

PENDAHULUAN

Piezoelektrisitas didefinisikan sebagai suatu kemampuan yang dimiliki sebagian kristal maupun bahan-bahan tertentu lainnya yang dapat menghasilkan suatu arus listrik jika mendapatkan perlakuan tekanan.

Efek piezoelektrik adalah efek terjadinya perubahan energi mekanik menjadi energi listrik. Oleh karena itu bahan piezoelektrik sangat dimungkinkan sekali untuk dijadikan konverter antara energi listrik dan gerakan mekanis

bahan. Bahan yang bersifat piezoelektrik banyak diaplikasikan sebagai aktuator atau lebih dikenal sebagai transduser pada berbagai peralatan elektronik. Salah satunya adalah transduser pada alat *Ultrasonografi* (USG) di bidang kesehatan yang berfungsi sebagai pembangkit gelombang dengan frekwensi 2 MHz hingga 19 MHz [1,2].

Pada saat ini bahan-bahan transduser yang banyak digunakan adalah *Lead Zirconium Titanat* (PZT). PZT memiliki keunggulan antara lain memiliki sifat dielektrik, feroelektrik dan piezoelektrik yang cukup kuat. Namun PZT bersifat tidak ramah lingkungan. Unsur Pb dalam PZT merupakan unsur yang bersifat racun yang apabila masuk ke dalam tubuh manusia dapat mengganggu proses metabolisme di dalam tubuh. Hasil samping produk PZT pada industri berupa limbah produksi dapat mencemari lingkungan. Hal inilah yang menjadi alasan bagi para peneliti untuk mencari bahan-bahan alternatif piezoelektrik yang bebas Pb. Berbagai keramik feroelektrik bebas Pb dan ramah lingkungan telah dikembangkan dan diperoleh, salah satunya bahan piezoelektrik tipe *perovskite* yang menjadi kandidat kuat untuk diaplikasikan.

Tipe keramik *perovskite* yang pertama kali diteliti dan dikembangkan pada tahun 1947 adalah BaTiO_3 (BT) dan menunjukan kepiezoelektrisitas yang cukup kuat tetapi memiliki suhu *Curie* yang relatif rendah sebesar 130°C . Tipe keramik *perovskite* yang lain seperti KNbO_3 memiliki suhu *Curie* yang tinggi, 435°C dengan sifat piezoelektrisitas yang kuat namun KNbO_3 sulit diperoleh secara metode konvensional dikarenakan penguapan potasium oksida selama proses *sintering* dalam sintesis [3]. Oleh sebab itu dikembangkan BNT yang dapat dipandang sebagai bahan masa depan. BNT dengan struktur *perovskite* rombohedral memiliki sifat feroelektrisitas kuat pada suhu kamar dan memiliki suhu *Curie* 320°C [4-7].

Bahan piezoelektrik BNT ini dapat dibuat dengan beberapa metode, diantaranya dengan metode kering (konvensional) dan dengan metode basah (kimia). Pada penelitian ini akan dilakukan pembuatan kristal BNT dengan metode *molten salt*, dimana kristal BNT disintesis dalam lelehan garam yaitu campuran NaCl-KCl. Sintesis BNT dengan metode *molten salt* memiliki banyak keunggulan dibandingkan dengan metode konvensional. Keuntungan tersebut diantaranya bentuk dan ukuran kristal dapat dikendalikan, campuran lebih homogen dan suhu sintesisnya lebih rendah [8].

METODE PERCOBAAN

Bahan dan Alat

Bahan-bahan kimia yang digunakan dalam penelitian ini adalah Bi_2O_3 dengan kemurnian 99,999% (ABCR, Puratrem), TiO_2 (Strem Chem.) dengan kemurnian 99,99%, Na_2CO_3 (Merck), NaCl dan KCl

(Merck), larutan AgNO_3 untuk menguji keberadaan sisa garam NaCl, KCl dan *aquadest*.

Peralatan yang digunakan adalah mortar dan lumpang untuk menggerus, pengaduk magnet, tungku pemanas *Thermolyne* 48000 untuk proses kalsinasi dan *sintering*. Peralatan pendukung lain yang digunakan dalam penelitian adalah peralatan gelas yang biasa digunakan dalam laboratorium kimia dan *crucible* (cawan porselen) sebagai wadah untuk pemanasan suhu tinggi.

Cara Kerja

Pembuatan $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) dilakukan dengan metode *molten salt*. Prosedur pembuatan BNT diawali dengan pembuatan $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ (BTO). BTO dibentuk dalam larutan garam dengan mencampurkan dua bahan dasar yaitu Bi_2O_3 dan TiO_2 . Kedua bahan Bi_2O_3 dan TiO_2 ditimbang dan dicampur secara stokiometri. Selanjutnya digerus selama 4 jam agar kedua bahan menjadi homogen. NaCl dan KCl ditimbang dengan perbandingan mol 1 : 1. Seperti halnya Bi_2O_3 dan TiO_2 , NaCl dan KCl juga dihomogenkan dengan cara menggerusnya. Campuran bahan dasar Bi_2O_3 dan TiO_2 yang telah digerus dicampurkan dengan campuran garam NaCl dan KCl dengan berat bervariasi dan dipanaskan pada berbagai suhu selama 4 jam. Untuk menghilangkan garamnya, maka campuran yang telah *disinter* tersebut dibilas dengan menggunakan air panas dan di tes dengan larutan AgNO_3 untuk memastikan bahwa sudah tidak ada lagi garam dalam campuran yang tersisa hanya $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$. Selanjutnya BTO yang telah dicuci dikeringkan. Ukuran dan struktur kristal BTO yang sudah dihasilkan dianalisis dengan *X-Ray Diffractometer* (XRD), dan morfologinya diamati dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM).

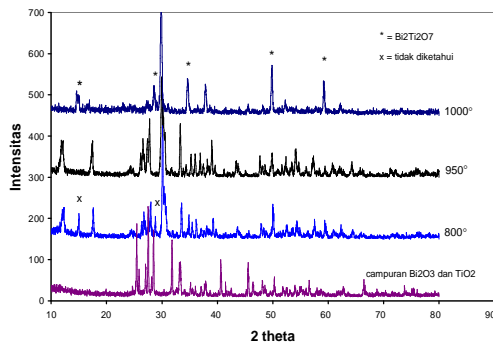
Selanjutnya kristal BTO dicampurkan dengan Na_2CO_3 berlebih ($> 50\%$ berat) dan digerus selama 4 jam. Setelah campuran kristal $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ dan Na_2CO_3 homogen, campuran tersebut *disinter* (dipanaskan) dengan suhu bervariasi mulai dari 600°C , 650°C , dan 700°C . Kelebihan bahan Na_2CO_3 selanjutnya dapat dihilangkan dengan membilas dengan air panas sehingga bahan Na_2CO_3 yang tidak bereaksi akan terbuang dan yang tersisa adalah bahan BNT murni.

Sampel BNT hasil sintesis selanjutnya dikarakterisasi dengan menggunakan XRD untuk melihat struktur serta ukuran kristalin, sedangkan untuk mengetahui morfologi dan analisis kimia semi kuantitatif unsur-unsur penyusun BNT dilakukan dengan menggunakan *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive Spectroscopy* (SEM-EDS).

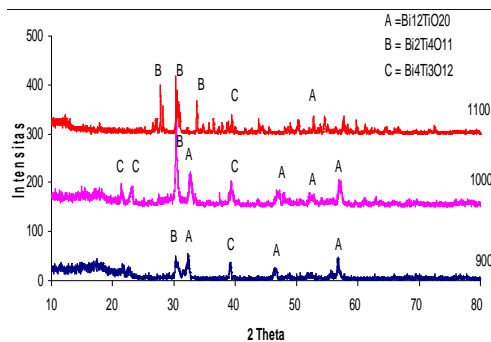
HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis Pola Difraksi $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$

Pola difraksi $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ (BTO) hasil sintesis pada berbagai suhu dengan metode *molten salt* pada



Gambar 1. Pola difraksi BTO dengan metode *molten salt*.



Gambar 2. Pola difraksi sintesis BTO cara padat pada suhu yang bervariasi

perbandingan garam (NaCl/KCl) dan sampel 1 : 1 ditunjukkan pada Gambar 1.

Transformasi bahan dasar ke fasa BTO ditunjukkan dari perubahan pola difraksi dari variasi suhu *sintering* 800 °C hingga 1000 °C. Fasa struktur BTO mulai terbentuk pada suhu 800 °C. Namun masih tampak puncak-puncak asing di sekitar sudut 2θ sama dengan 15,001° dan 28,818°. Fasa BTO muncul pada suhu 950 °C tanpa puncak asing, seperti diperoleh peneliti sebelumnya [8].

Sebagai pembanding juga telah dilakukan sintesis BTO dengan cara padat biasa dan pola difraksi sinar-X ditampilkan pada Gambar 2.

Jika dibandingkan dengan sintesis cara padat biasa, sintesis BTO dengan metode *molten salt* jauh lebih baik. Dengan cara padat, pada suhu 1.100 °C hanya sedikit BTO yang terbentuk sedangkan dengan metode *molten salt* pada suhu sintesis 950 °C BTO sudah total terbentuk. Jadi dapat disimpulkan bahwa *molten salt* tidak hanya sebagai wadah sintesis BTO tetapi juga berfungsi sebagai katalis.

Reaksi antara Bi_2O_3 dan TiO_2 terjadi setelah campuran NaCl-KCl meleleh. Dengan adanya lelehan garam, reaksi antara Bi_2O_3 dan TiO_2 lebih mudah terjadi, sehingga BTO yang terbentuk semakin banyak. Dengan *molten salt* suhu sintesis BTO menjadi relatif lebih rendah dan tingkat keberhasilannya pun jauh lebih tinggi.

Hasil identifikasi puncak difraksi kristal BTO yang terbentuk pada suhu 950 °C sesuai dengan tabel Hanawalt dengan Nomor 15-0325 dengan struktur

kristalnya adalah triklinik dengan tiga puncak tertinggi dari pola difraksi adalah 2θ sama dengan 29,939°, 30,16° dan 27,761°.

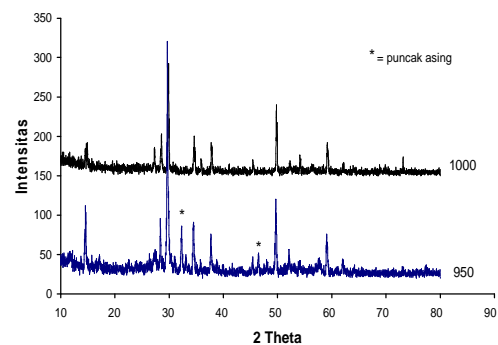
Analisis Pola Difraksi Sintesis $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TiO}_3$ Penambahan NaCl-KCl

Pola difraksi dari hasil reaksi Bi_2O_3 dan TiO_2 dalam *molten salt* dengan perbandingan berat campuran NaCl-KCl dua kali berat campuran Bi_2O_3 dan TiO_2 dapat dilihat pada Gambar 3.

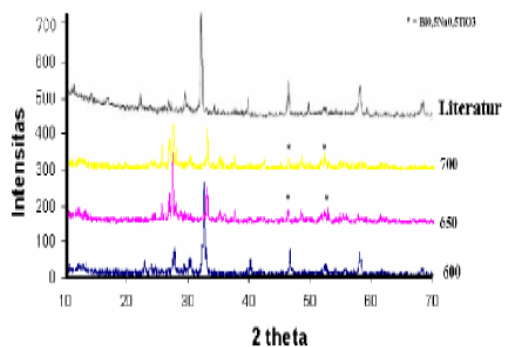
Dari bentuk pola difraksi sintesis $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ dengan perbandingan berat campuran NaCl-KCl dua kali berat campuran Bi_2O_3 dan TiO_2 pada suhu *sintering* 950 °C dan 1.000 °C terbentuk fasa baru yaitu $\text{Bi}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. Pola difraksi pada kedua suhu *sintering* hampir sama. Pada Suhu 950 °C diperoleh puncak asing di sekitar sudut 2θ sama dengan 32,34° dan 46,52°.

Identifikasi fasa dari BTO dengan penambahan Na_2CO_3 berlebih dengan suhu *sintering* yang bervariasi ditunjukkan pada Gambar 4. Pada suhu 650 °C dan 700 °C ditemukan fasa baru dan hanya sedikit BNT yang ditemukan yaitu di sekitar sudut 2θ sama dengan 30,46°; 46,84° dan 52,74°. Tetapi pada suhu 600 °C, BNT sudah terbentuk seperti diperlihatkan pada Gambar 4.

Konversi dari BTO menjadi BNT terjadi pada suhu 600 °C, pada suhu di atas 600 °C terbentuk fasa lain. Hal ini karena pada suhu rendah proses



Gambar 3. Pola difraksi campuran Bi_2O_3 dan TiO_2 dengan perbandingan campuran $\text{NaCl:KCl} = 1 : 2$ pada suhu yang bervariasi



Gambar 4. Pola difraksi BTO dengan penambahan Na_2CO_3 berlebih BNT pada suhu yang bervariasi.

konversi dapat dikendalikan oleh energi difusi yang rendah dari ion Na yang ditambahkan ke BTO untuk membentuk BNT dan Na_2CO_3 berlebih tidak berpengaruh dalam reaksi. Ketika semua BTO telah terkonversi menjadi BNT, tidak ada lagi kelebihan ion Na yang bereaksi. Pada suhu yang lebih tinggi dari 600 °C, difusi dari jenis lain menjadi lebih aktif dan kelebihan Na_2CO_3 berpengaruh pada proses meminimalkan energi dari keseluruhan sistem, sehingga menghasilkan fasa baru yang lebih stabil [8].

Pola difraksi BNT yang terbentuk mengidentifikasi struktur kristalnya rombohedral. Dari perhitungan didapatkan bahwa kristal BNT yang terbentuk mempunyai struktur kristal rombohedral dengan parameter kisi $a = b = c = 3,884 \text{ \AA}$ dan $\alpha = \beta = \gamma = 90,12243^\circ$. Hasilnya diperoleh seperti penelitian sebelumnya [9].

Dari pola difraksi BTO dan BNT di atas juga dilakukan pengukuran terhadap ukuran kristalnya dengan menggunakan rumus *Debye-Scherrer* seperti pada Persamaan (1) :

$$t = \frac{0,9\lambda}{B \cos \theta} \quad \dots\dots\dots (1)$$

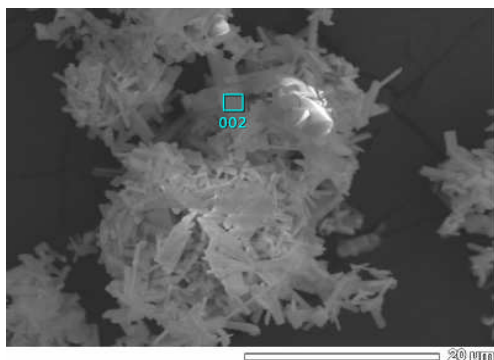
Dimana :

- t = Diameter kristalit
- B = Lebar setengah puncak maksimal dalam 2 θ
- θ = Sudut *Bragg*

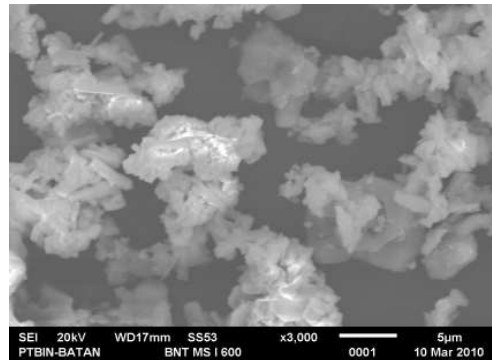
Dengan Persamaan (1) didapat ukuran kristalit rata-rata untuk kristal BTO sebesar $D = 16,769 \text{ nm}$ dan untuk BNT didapatkan ukuran kristal sebesar $D = 17,139 \text{ nm}$.

Analisis Morfologi dan Semi Kuantitatif

BTO hasil reaksi *molten salt* antara Bi_2O_3 dan TiO_2 dilakukan dengan perbesaran 2500 kali dan morfologi butir yang terbentuk ditunjukkan pada Gambar 5. Butir BTO mempunyai bentuk seperti balok balok panjang dengan ukuran butir bervariasi yaitu berkisar antara 2,8 μm hingga 5,77 μm



Gambar 5. Morfologi kristal BTO hasil reaksi *molten salt*

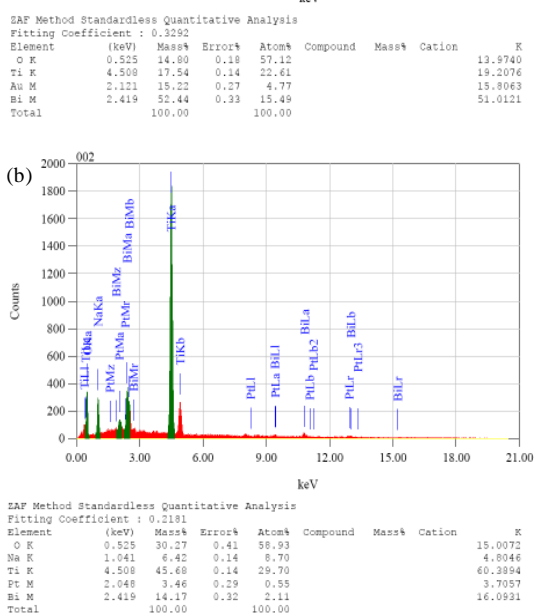
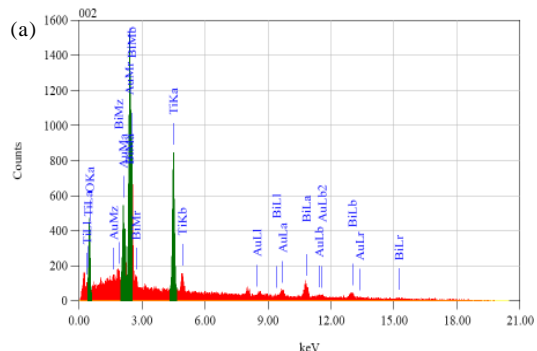


Gambar 7. Morfologi kristal BNT.

Bentuk butir BNT yang merupakan hasil reaksi antara BTO dengan Na_2CO_3 ditunjukkan pada Gambar 6. Pengukuran dilakukan dengan perbesaran 3000 kali.

Bentuk butir BNT berbeda dari BTO sebelum penambahan Na_2CO_3 . Bentuknya lebih tidak beraturan dimana masih ada yang berbentuk balok dan berbagai bentuk lain dengan ukuran partikel berkisar antara 3,2 μm hingga 7,6 μm .

Analisis semi kuantitatif dengan *Energy Dispersive Spectroscopy (EDS)* dilakukan untuk



Gambar 8. Hasil EDS (a). butir BTO dan (b). BNT

membuktikan bahwa reaksi antara BTO dengan Na_2CO_3 untuk membentuk BNT telah berhasil dilakukan.

Dari hasil EDS yang ditunjukkan pada Gambar 8 terlihat bahwa terdapat perbedaan unsur penyusun antara kristal $\text{Bi}_2\text{Ti}_4\text{O}_{11}$ pada Gambar 8(a) yang hanya terdiri dari tiga unsur utama yaitu Bi, Ti dan O, sedangkan pada Gambar 8(b) terdapat satu tambahan unsur lagi yaitu Na.

KESIMPULAN

Proses pembuatan bahan piezoelektrik $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNT) dengan metode *molten salt* yang berlangsung dalam dua tahap telah berhasil dilakukan. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa proses *molten salt* ini mempunyai kelebihan dibanding metode lain. Ukuran kristalit yang dihasilkan berada dalam ukuran nanokristalin yaitu 17,139 nm. Proses pembentukan fasa BNT terjadi pada suhu yang lebih rendah yaitu 600°C dan memiliki struktur kristal rombohedral.

DAFTAR ACUAN

- [1]. KEIJI KUSUMOTO, *Intelligent Materials*, **11** (2001)4
- [2]. TAKEUCHI, T and TANI, T, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **110**, (2002) 232
- [3]. KOSEC, M and KOLAR, D, *Mat. Res. Bull.*, **10** (1975) 335
- [4]. CHANG YEOUL KIM, TOHRU SEKINO, YAMAMOTO Y., NIHARA K., *J. Sol-Gel Science and Technology*, **33** (2005) 307-314
- [5]. TAKENAKA, T, MARUYAMA, K and SAKATA, K, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **130**, (1991) 2236
- [6]. ISUPOV, V, *Ferroelectric*, **315** (1) (2005) 123-147
- [7]. H. NAGATA and T. TAKENAKA, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** [9B] (1997) 6055-7
- [8]. VANEESORN N., KIJAMNAJSUK S., THANABOONSOMBUT A., *J. Science and Technology of Advanced Materials*, **6** (2005) 278-281
- [9]. XIUJIE YI, CHEN H., CAO W. ZHAO N., YANG D., MA G., YANG C., HAN J., *Journal of Crystal Growth*, **281** (2005) 364-369